### PCT

### 特許性に関する国際予備報告(特許協力条約第二章)

(法第12条、法施行規則第56条) [PCT36条及びPCT規則70]

REC'D	1 4 OCT 2004
WIPO	PCT

出願人又は代理人 の書類記号 H1925-01	今後の手続きについては、様式PCT/IPEA/416を参照すること。							
国際出願番号 PCT/JP03/13520	国際出願日 (日.月.年) 23.10.2003 優先日 (日.月.年) 24.10.2002							
国際特許分類 (IPC) Int.Cl'. H01M 2/16, D21H 13/16								
出願人 (氏名又は名称) 大和紡績株式会社	Ł							
法施行規則第57条(PCT36条)。	•							
<ul> <li>2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。</li> <li>3. この報告には次の附属物件も添付されている。</li> <li>a ✓ 附属書類は全部で 5 ページである。</li> </ul>								
✓ 補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面の用紙(PCT規則70.16及び実施細則第607号参照)								
第1 欄4. 及び補充欄に示   国際予備審査機関が認定した	」たように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの と差替え用紙							
b ② 電子媒体は全部で (電子媒体の種類、数を示す)。 配列表に関する補充欄に示すように、コンピュータ読み取り可能な形式による配列表又は配列表に関連するテー ブルを含む。(実施細則第802号参照)								
4. この国際予備審査報告は、次の内容:	子合む。							
<ul> <li></li></ul>								
□ 第VI欄 ある種の引用文献 □ 第VI欄 国際出願の不備 □ 第VI欄 国際出願に対する意見								
同際又農家本の額や食む四四1~口	国際子供を木却生もたけ キロ							
国際予備審査の請求書を受理した日 19.04.2004	国際予備審査報告を作成した日 22.09.2004							
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP 郵便番号100-8915 東京都千代田区額が関三丁目4	. 植 前 充 司							

第 I 欄 報告の基礎
1. この国際予備審査報告は、下記に示す場合を除くほか、国際出願の言語を基礎とした。
<ul> <li>□ この報告は、 語による翻訳文を基礎とした。</li> <li>それは、次の目的で提出された翻訳文の言語である。</li> <li>□ PCT規則12.3及び23.1(b)にいう国際調査</li> <li>□ PCT規則12.4にいう国際公開</li> <li>□ PCT規則55.2又は55.3にいう国際予備審査</li> </ul>
2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)
出願時の国際出願書類
▼ 期細告       パージ、出願時に提出されたもの         第 1-4,7-45       ページ*、23.07.2004       付けで国際予備審査機関が受理したもの         第       ページ*、       付けで国際予備審査機関が受理したもの
<ul> <li>▼ 請求の範囲</li> <li>第 2-24, 26-29, 31, 32</li> <li>項、 出願時に提出されたもの</li> <li>項*、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの</li> <li>項*、 23.07.2004 付けで国際予備審査機関が受理したもの</li> <li>第 付けで国際予備審査機関が受理したもの</li> </ul>
✓ 図面       第 1/1-8/8       ページデ密、出願時に提出されたもの         第 (ページ/図*、 付けで国際予備審査機関が受理したもの)       ページ/図*、 付けで国際予備審査機関が受理したもの         配列表又は関連するテーブル
配列表に関する補充欄を参照すること。 3.
□ 明細書 第 ページ 項 項 図面 第 ページ/図 配列表に関連するテーブル(具体的に記載すること) □ 配列表に関連するテーブル(具体的に記載すること) □ 配列表に関連するテーブル(具体的に記載すること) □ のののでは、
4. ここの報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。 (PCT規則70.2(c))
□ 明細書       第       ページ         □ 請求の範囲       第       項         □ 図面       ページ/図         □ 配列表(具体的に記載すること)       □         □ 配列表に関連するテーブル(具体的に記載すること)       □
* 4. に該当する場合、その用紙に "superseded" と記入されることがある。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、 それを裏付ける文献及び説明							
1.	見解						
	新規性(N)	請求の範囲 請求の範囲	1-29, 31, 32		有 · 無		
	進歩性(IS)	請求の範囲 請求の範囲	1-29, 31, 32		有無		
	産業上の利用可能性(IA)	請求の範囲 ・請求の範囲			有無		

#### 2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

[文献一覧]何れの文献も国際調査報告の際に引用した文献である。
1. JP 2002-134088 A, (大和紡績株式会社), 2002. 05. 10, 請求項1-11、実施例など (ファミリーなし)
2. JP 2002-203530 A, (大和紡績株式会社), 2002. 07. 19, 請求項1-9、実施例など (ファミリーなし)

[説明] 請求の範囲第1-29,31,32項は、文献1,2の何れの記載からも、新規性・進歩性を否定されない。 で表記,2には何れも、湿熱ゲル化する樹脂を付した不織布に対して、湿熱ゲル化処理を行うことにより繊維間を軽く接着させる点についての記載はあるものの、湿熱ゲル化後加圧すること及び当該工程がもたらす性状への影響及び効果について、文献1,2には何ら記載も示唆もされていない。 て板状極細繊維を発現させた後、低融点成分の融点よりも低い温度で乾式にて熱カレンダー処理を施したのみである。そのため、不織布の平均孔径及び最大孔径を均一にすることは困難であり、孔径のばらつきが大きい不織布となるため、安定した突き刺し強力が得られなかった。また、特許文献6~9では湿熱接着繊維を使用したセパレータが開示されているが、いずれもアルカリ電池用のセパレータを目的としたものであり、有機電解液電池に要求されるような孔径の小さいセパレータを得ることは困難である。

# 発明の開示

5

20

25

本発明はかかる実情に鑑みなされたものであって、有機電解液電池用セパレータとして提案されている不織布に代わり、安価に製造が可能であるとともにセパレータの生産における歩留まりに優れ、且つ電解液保持性に優れ、電池に組み込んだときの微粉末短絡及びデンドライト短絡を防止する(電池の不良品率の小さい)ことができる不織布で構成される有機電解液電池用セパレータを提供することを目的とする。さらに、安全性に優れ、短絡が少なく、電池特性に優れた有機電解液電池を提供することを目的とする。

本発明の有機電解液電池用セパレータは、水分存在下で加熱することによってゲル化し得る樹脂 (以下、「湿熱ゲル化樹脂」という。)と、他の繊維を含む不織布で構成され、前記他の繊維は記湿熱ゲル化樹脂が湿熱ゲル化されて加圧により押し拡げられた膜状のゲル化物 (以下、「ゲル化物」という。)で固定されており、ASTM F 316 86に準拠して測定される不織布の平均孔径が 0.  $3 \mu$  m以上  $5 \mu$  m以下の範囲にあり、且つ最大孔径が  $3 \mu$  m以上  $2 0 \mu$  m以下の範囲を満たすことを特徴とする。

本発明の有機電解液電池用セパレータは、以下の方法で製造することができる。すなわち、水分存在下で加熱することによってゲル化し得る

樹脂(以下、「湿熱ゲル化樹脂」という。)が繊維表面の少なくとも一部に存在している湿熱ゲル化繊維と、他の繊維を含む有機電解液電池用セパレータの製造方法であって、少なくとも下記A-Dの全工程を含むことを特徴とする。

- 5 A. 湿熱ゲル化繊維と、他の繊維を含む不織シートを作製する工程。
  - B. 前記不織シートを親水処理する工程。
  - C. 前記親水処理された不織シート(以下、「親水不織シート」という。) に水分を付与して、含水シートにする工程。
- D. 前記含水シートを、前記湿熱ゲル化樹脂のゲル化する温度以上、前
   10 記湿熱ゲル化樹脂の [融点-20℃] 以下の範囲内にある温度に設定された熱処理機で加圧かつ湿熱処理(以下、「ゲル加工」という。)して、湿熱ゲル化樹脂をゲル化させて押し拡げ膜状とするとともに、ゲル化した湿熱ゲル化樹脂によって他の繊維を固定する工程。

本発明の有機電解液電池は、前記セパレータを組み込むことにより得 15 られる。

# 図面の簡単な説明

図1は、本発明の実施例において使用した不織布表面の接触角を測定する方法を示す断面図。

図2は、本発明の実施例1で得られた不織シート表面の200倍のS 20 EM顕微鏡写真。

図3A~Dは、本発明の実施例1で得られた電池セパレータ表面の2 00倍のSEM顕微鏡写真。

図4は本発明の実施例1で得られた電池セパレータ断面の500倍の SEM顕微鏡写真。

25 図 5 A~B は本発明の実施例 5 で得られた不織シート表面の 3 0 0 倍の S E M 顕微鏡写真、図 5 C~D は同 3 0 0 倍の断面写真である。

# 請求の範囲

1. (補正後)水分存在下で加熱することによってゲル化し得る湿熱ゲル化樹脂と、他の繊維を含む不織布で構成され、

前記他の繊維は前記湿熱ゲル化樹脂が湿熱ゲル化されて加圧により押 し拡げられた膜状のゲル化物で固定されており、

ASTM F 316 86に準拠して測定される不織布の平均孔径が 0.3  $\mu$  m以上 5  $\mu$  m以下の範囲にあり、且つ最大孔径が 3  $\mu$  m以上 2 0  $\mu$  m以下の範囲を満たす有機電解液電池用セパレータ。

- 2. 前記湿熱ゲル化樹脂が、当該樹脂を繊維表面の少なくとも一部に存 10 在させた湿熱ゲル化繊維である請求項1に記載の有機電解液電池用セパ レータ。
  - 3. 前記湿熱ゲル化樹脂の不織布に占める割合が、10 mass%以上50 mass%以下の範囲内にある請求項1に記載の有機電解液電池用セパレータ。
- 15 4. 前記湿熱ゲル化樹脂が、エチレンービニルアルコール共重合体である請求項1に記載の有機電解液電池用セパレータ。
  - 5. 前記他の繊維の繊維径が、15μm以下である請求項1に記載の有機電解液電池用セパレータ。
- 6. 前記不織布を構成する他の繊維の平均繊維径が、10μm以下であ 20 る請求項1に記載の有機電解液電池用セパレータ。
  - 7. 前記不織布を構成する湿熱ゲル化樹脂以外の繊維が、オレフィン系繊維である請求項1に記載の有機電解液電池用セパレータ。
  - 8. 前記他の繊維が、単繊維強度が4.5 c N/d t e x 以上の高強度 繊維を、湿熱ゲル化樹脂100質量部とした場合、5質量部以上250
- 25 質量部以下の範囲内で含む請求項1に記載の有機電解液電池用セパレー タ。

23. 前記不織布の突き刺し強力及びその標準偏差から下記式で算出される突き刺し強力のバラツキ指数が、0.165以下である請求項22 に記載の有機電解液電池用セパレータ。

突き刺し強力のバラツキ指数=標準偏差/突き刺し強力

- 5 24. 前記セパレータの厚みが、15μm以上80μm以下の範囲内にあり、前記不織布の比容積が、1.2cm³/g以上2.5cm³/g 以下の範囲内にある請求項1に記載の有機電解液電池用セパレータ。
  - 25. (補正後)水分存在下で加熱することによってゲル化し得る湿熱ゲル化樹脂が繊維表面の少なくとも一部に存在している湿熱ゲル化繊維
- 10 と、他の繊維を含む不織布で構成される有機電解液電池用セパレータの 製造方法であって、少なくとも下記A-Dの全工程を含む有機電解液電 池用セパレータの製造方法。
  - A. 湿熱ゲル化繊維と、他の繊維を含む不織シートを作製する工程。
  - B. 前記不織シートを親水処理する工程。
- 15 C. 前記親水処理された不織シートに水分を付与して、含水シートにする工程。
  - D. 前記含水シートを、前記湿熱ゲル化樹脂のゲル化する温度以上、前 記湿熱ゲル化樹脂の融点-20℃以下の範囲内にある温度に設定された 熱処理機で加圧かつ湿熱処理してゲル加工し、湿熱ゲル化樹脂をゲル化
- 20 させて押し拡げ膜状とするとともに、ゲル化した湿熱ゲル化樹脂によって他の繊維を固定する工程。
  - 26. 前記不織シートの平均繊維径が10μm以下である請求項25に 記載の有機電解液電池用セパレータの製造方法。
- 27. 前記親水処理された不織シートに付与される水分率が、20 mass%以上300mass%以下の範囲内にある請求項25に記載の有機電 解液電池用セパレータの製造方法。

- 28. 前記親水処理された不織シート表面の脱塩水滴下5秒後の接触角が、60度以下である請求項25に記載の有機電解液電池用セパレータの製造方法。
- 29. 前記親水処理が、フッ素ガス雰囲気に晒す処理である請求項25 に記載の有機電解液電池用セパレータの製造方法。
- 30. (削除)
- 31. 前記ゲル加工が、熱ロールによる加圧加工であり、前記熱ロールの線圧が、350N/cm以上10000N/cmの範囲である請求項25に記載の有機電解液電池用セパレータの製造方法。
- 10 32. 請求項1に記載のセパレータを組み込んだ有機電解液電池。